

MENU

SEARCH

INDEX

DETAIL

JAPANESE

1 / 1

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-085054

(43)Date of publication of application : 28.03.2000

(51)Int.Cl.

B32B 15/08
B32B 27/36
C08L 67/02
C08L 67/04

(21)Application number : 10-259511

(71)Applicant : DAICEL CHEM IND LTD
UNIC CORP

(22)Date of filing : 14.09.1998

(72)Inventor : ISHIKAWA MASAHIRO
NAKAMURA MASAYA

(54) COLLAPSIBLE LAMINATE AND MANUFACTURE THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a collapsible laminate which comprises an easily printable resin layer and a metallic layer and is of high strength and collapsibility and besides, efficiently cuts off solar rays, temperatures, moisture or the like and hardly chargeable.

SOLUTION: This collapsible laminate comprises a biodegradable resin layer which is composed of a biodegradable polyester resin composition obtained by blending 1-200 pts.wt. polycaprolactone to 100 pts.wt. aliphatic polyester resin and a metallic thin film layer formed on at least a part of one of the surfaces of the biodegradable resin layer. A metallic thin film is transferred by laminating a metallic foil on the surface of the biodegradable resin layer or vapor-depositing or plating a metal on the surface of the resin layer.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C) 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-85054

(P2000-85054A)

(43)公開日 平成12年3月28日 (2000.3.28)

(51)Int.Cl.⁷

B 32 B 15/08
27/36
C 08 L 67/02
67/04

識別記号

104

F I

B 32 B 15/08
27/36
C 08 L 67/02
67/04

テマコード(参考)

104Z 4F100
4J002

審査請求 未請求 請求項の数15 OL (全 13 頁)

(21)出願番号 特願平10-259511

(22)出願日 平成10年9月14日 (1998.9.14)

(71)出願人 000002901

ダイセル化学工業株式会社
大阪府堺市鉄砲町1番地

(71)出願人 598020561

株式会社ユニック
東京都港区虎ノ門一丁目18番1号

(72)発明者 石川 雅博

千葉県松戸市新松戸南1丁-323
中村 正也

(72)発明者 東京都中野区中野5-16-6

(74)代理人 100090491

弁理士 三浦 良和

最終頁に続く

(54)【発明の名称】崩壊性積層体およびその製造方法

(57)【要約】

【課題】 強度が高く、崩壊性に優れ、太陽光、温度、水分などの遮断性能が高く、帯電しにくく、印刷が容易な樹脂層と金属層からなる崩壊性積層体およびその製造方法を提供すること。

【解決手段】 脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対してポリカプロラクトン1~200重量部を配合してなる生分解性ポリエステル樹脂組成物からなる生分解性樹脂層(A)、及び該生分解性樹脂層の一方の表面の少なくとも一部に設けられた金属薄膜層(B)からなる崩壊性積層体、及び生分解性樹脂層の表面に金属箔をラミネートすること、金属を蒸着もしくはメッキすることすること、金属薄膜を転写することによる前記崩壊性積層体の製造方法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対してポリカプロラクトン1~200重量部を配合してなる生分解性ポリエステル樹脂組成物からなる生分解性樹脂層(A)、及び該生分解性樹脂層の一方の表面の少なくとも一部に設けられた金属薄膜層(B)からなる崩壊性積層体。

【請求項2】 脂肪族ポリエステル樹脂が脂肪族ジカルボン酸及び脂肪族ジオールからなることを特徴とする請求項1に記載の崩壊性積層体。

【請求項3】 脂肪族ジカルボン酸がコハク酸及び/又はアジピン酸であることを特徴とする請求項2に記載の崩壊性積層体。

【請求項4】 ジオールがエチレングリコール及び/又は1,4-ブタンジオールからなる請求項2に記載の崩壊性積層体。

【請求項5】 脂肪族ポリエステル樹脂が脂肪族ポリエステル樹脂を脂肪族ジイソシアネート化合物で高分子量化したものである請求項2に記載の崩壊性積層体。

【請求項6】 脂肪族ポリエステル樹脂がコハク酸および1,4-ブタンジオールからなるポリエステル樹脂をヘキサメチレンジイソシアネートで高分子量化したものである請求項4に記載の崩壊性積層体。

【請求項7】 生分解性樹脂層が、生分解性樹脂組成物のインフレーションフィルムである請求項1に記載の崩壊性積層体。

【請求項8】 金属がアルミニウム、亜鉛、スズ、銅、金、銀、白金、パラジウム、コバルト、コバルトニッケル、ニッケル、ニッケルクロム、クロム及びコバルト-クロムからなる群から選ばれた一種である請求項1に記載の崩壊性積層体。

【請求項9】 金属層が金属箔、蒸着膜、転写薄膜又はメッキ膜であることを特徴とする請求項1に記載の崩壊性積層体。

【請求項10】 崩壊性積層体の表面に表面コート層を設けることを特徴とする請求項1に記載の崩壊性積層体。

【請求項11】 生分解性樹脂層の金属薄膜層と接する面と反対の表面に粘着剤層を設け、該粘着剤層の表面に剥離紙を設けることを特徴とする請求項10に記載の崩壊性積層体。

【請求項12】 生分解性樹脂層と金属箔をラミネートすることによる請求項1~8のいずれかに記載の崩壊性積層体の製造方法。

【請求項13】 生分解性樹脂層の表面に金属を蒸着することを特徴とする請求項1~8のいずれかに記載の崩壊性積層体の製造方法。

【請求項14】 生分解性樹脂層の表面に金属をメッキすることを特徴とする請求項1~8のいずれかに記載の崩壊性積層体の製造方法。

【請求項15】 生分解性樹脂層の表面に金属薄膜を転写することを特徴とする請求項1~8のいずれかに記載の崩壊性積層体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、脂肪族ポリエステル樹脂にポリカプロラクトンを配合してなる生分解性ポリエステル樹脂組成物からなる生分解性樹脂層(A)、及び該生分解性樹脂層の一方の表面の少なくとも一部に設けられた金属薄膜層(B)からなる崩壊性積層体及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、ポリオレフィン等のプラスチックは、安定性、耐久性のあることが特徴であり、包装材、建築資材、自動車、その他様々な分野に使用され、大量消費されている。それらの使用後の廃棄処分方法としては、焼却処分や、埋め立て処分が挙げられるが、ポリオレフィンや塩化ビニール等の難分解性の樹脂は、焼却の際には高発熱量による焼却炉の損傷や、有害性ガスの発生が問題となり、一方、埋め立て処分の場合は、環境中にいつまでも残留することによる環境汚染が問題になっている。そこで生分解性樹脂の使用が検討されている。

【0003】 生分解性樹脂とは、使用時は汎用のプラスチックスとほぼ同等の物性を持つが、廃棄後、活性汚泥中、土壤中、水中、堆肥中等の自然環境下において速やかにバクテリアやカビ等の微生物又は温度、湿度、光等の自然条件により、分解、資化される高分子をいい、ものによっては最終的には二酸化炭素と水になる。従来より、生分解性樹脂として、澱粉-EVOH(ポリビニルアルコール)系樹脂、EVOH-脂肪族ポリエステル系樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂-ポリオレフィン系樹脂等のブレンド系の樹脂組成物が知られており、これらの樹脂組成物は各種の形状に成形されて実用に供されている。

【0004】 これらの内、加工性、コスト、機械特性、耐水性等の点で比較的バランスがとれていて、様々な用途に使いやすい樹脂として注目されているものとして、化学合成で得られる脂肪族ポリエステル樹脂が挙げられる。脂肪族ポリエステル樹脂は、 α 、 ω -2官能脂肪族アルコールと、 α 、 ω -2官能脂肪族カルボン酸の重結合で得られるポリエステル樹脂で代表されるが、一般的に融点が低く、従来のポリオレフィンの代替としては使用できるものではない。ところが、ある種のポリエステル樹脂は融点が100°C以上で、熱可塑性を有することが知られており、合成検討が行われてきた。すなわち、コハク酸と1,4-ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂、コハク酸とエチレングリコールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸とネオペンチルグリコールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸と1,4-

ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸とエチレングリコールから得られるポリエステル樹脂等がそれらに相当する。このうち、シュウ酸から得られるポリエステル樹脂は特に熱安定性が悪く、高分子量に至らないが、コハク酸から得られるポリエステル樹脂は熱安定性が比較的良好であり、合成の工夫が行われてきた。しかし、これらコハク酸系の脂肪族ポリエステル樹脂であっても、一般的な装置を用いて重縮合する場合、高分子量にするのは難しく、実用的な機械強度を有する樹脂は得られにくい。

【0005】そこで、ポリエステル樹脂の分子末端水酸基をポリイソシアネート等を用いてウレタン結合により高分子量化することが行われている。ここで用いるポリイソシアネートは芳香族系よりも脂肪族系の方が生分解性に優れた性質を示すことから、ヘキサメチレンジイソシアネート等がしばしば用いられる。このようにして、低分子量の脂肪族ポリエステル樹脂を高分子量化し、機械特性を確保して、射出成形、ブロー成形、繊維化、フィルム化等の加工に対応させているのが現状である。

【0006】ところが、これら脂肪族ポリエステル樹脂であっても結晶性が高かったり、前記のようにウレタン結合を樹脂分子内に導入した場合、微生物による生分解性が通常低下する。このことは、樹脂の非晶部分から生分解が進み、結晶部分は分解しにくく、残りやすいことが知られていること、またポリオールとして生分解性に優れるポリカプロラクトンポリオールを用いても、ポリイソシアネートにヘキサメチレンジイソシアネートを用いたカプロラクトン系のポリウレタンの生分解性は、JIS K 6950で規定されている活性汚泥中での分解試験で評価すると、殆ど分解が認められないという結果になることからも明かである。このような傾向は、比較的低密度のウレタン結合含有樹脂においても認められることから、本来生分解性のあるポリエステル樹脂も高分子量化のために含まれることとなる数重量%程度の少量のウレタン結合の存在により、生分解性が低下する原因になっていることが多い。事実、数平均分子量10,000程度のコハク酸系のポリエステル樹脂の分子末端水酸基をポリイソシアネートを用いて4~5個つないで数平均分子量40,000~50,000に高分子量化したポリエステル樹脂をJIS K 6950で規定されている活性汚泥中での分解試験で評価すると、難分解性という評価結果になる。

【0007】また、ポリエステル系生分解性樹脂については特開平8-11206号公報には成形時のドローダウンを避けるために下向きのダイスの考案がなされ、特開平8-150658号公報には澱粉-EVOH-ポリカプロラクトン系の樹脂を使用した成形時の特定の温度や成形条件等の製造方法についての記載がある。特開平8-188706号公報には、ポリカプロラクトン80~100重量%と、生物によって産出される生分解性直

鎖状ポリエステル系樹脂20~0重量%との混合物100重量部に対して滑剤0.3~0.8重量部を配合してなる組成物で成形されることを特徴とする生分解性プラスチックからなる袋が開示されている。しかしながら、上記のポリカプロラクトンと生物によって産出される生分解性直鎖状ポリエステル系の樹脂組成物からなる袋は、機械的強度に問題がありフィルムを量産することは困難であり、また得られた袋の分解速度は十分速いとは言えない。

【0008】一方、フィルムまたはシートと金属を積層する方法として、フィルムと金属箔を共押出するラミネート法やフィルムの表面にアルミニウム等をメタライジングする各種の方法が知られている（実用プラスチック成形加工事典、232~238、548~562頁、（株）産業調査会、1997年）。

例えば、ラミネート法としては、アルミニ箔を低密度ポリエチレンフィルムとポリエチレンテレフタレートフィルムと共に押出して3層ラミネートする方法が知られている。また、金属蒸着層を形成する方法としては、フィルムの表面に、直接アルミニウムを蒸着する方法、および、フィルムの表面にアンダーコート剤を塗布し、その後に、形成されたアンダーコート層の表面上にアルミニウムを蒸着する方法等が知られている。特に、前者は、真空雰囲気でアルミニウムを蒸気化し、蒸着すべきフィルムの表面上に凝縮させる、いわゆる真空メタライジング法として知られている。また、特開平9-131830号公報には、可塑剤を含む軟質ポリ塩化ビニルの表面に金属蒸着層を転写することによる積層体の製造方法が記載されている。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、強度が高く、崩壊性に優れ、太陽光、温度、水分などの遮断性能が高く、帶電しにくく、印刷が容易な樹脂層と金属層からなる崩壊性積層体およびその製造方法を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、脂肪族ポリエステル樹脂にポリカプロラクトンを配合した生分解性ポリエステル樹脂組成物が生分解性に優れることから、それからなる層と金属薄膜層からなる積層体が崩壊性に優れ、かかる問題点を解決しうることを見い出し、本発明を完成するに至った。

【0011】すなわち本発明の第1は、脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対してポリカプロラクトン1~200重量部を配合してなる生分解性ポリエステル樹脂組成物からなる生分解性樹脂層（A）、及び該生分解性樹脂層の一方の表面の少なくとも一部に設けられた金属薄膜層（B）からなる崩壊性積層体を提供する。また本発明の第2は、脂肪族ポリエステル樹脂が脂肪族ジカルボン酸及び脂肪族ジオールからなることを特徴とする本発明の第1の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第

3は、脂肪族ジカルボン酸がコハク酸及び／又はアジビン酸であることを特徴とする本発明の第2の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第4は、ジオールがエチレングリコール及び／又は1,4-ブタンジオールからなる本発明の第2の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第5は、脂肪族ポリエステル樹脂が脂肪族ポリエステル樹脂を脂肪族ジソシアネート化合物で高分子量化したものである本発明の第2の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第6は、脂肪族ポリエステル樹脂がコハク酸および1,4-ブタンジオールからなるポリエステル樹脂をヘキサメチレンジイソシアネートで高分子量化したものである本発明の第4の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第7は、生分解性樹脂層が、生分解性樹脂組成物のインフレーションフィルムである本発明の第1の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第8は、金属がアルミニウム、亜鉛、スズ、銅、金、銀、白金、パラジウム、コバルト、コバルトニッケル、ニッケル、ニッケルクロム、クロム及びコバルトクロムからなる群から選ばれた一種である本発明の第1の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第9は、金属層が金属箔、蒸着膜、転写薄膜又はメッキ膜であることを特徴とする本発明の第1の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第10は、崩壊性積層体の表面に表面コート層を設けることを特徴とする本発明の第1の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第11は、生分解性樹脂層の金属薄膜層と接する面と反対の表面に粘着剤層を設け、該粘着剤層の表面に剥離紙を設けることを特徴とする本発明の第10の崩壊性積層体を提供する。また本発明の第12は、生分解性樹脂層と金属箔をラミネートすることによる本発明の第1～8のいずれかの崩壊性積層体の製造方法を提供する。また本発明の第13は、生分解性樹脂層の表面に金属を蒸着することを特徴とする本発明の第1～8のいずれかの崩壊性積層体の製造方法を提供する。また本発明の第14は、生分解性樹脂層の表面に金属をメッキすることを特徴とする本発明の第1～8のいずれかの崩壊性積層体の製造方法を提供する。また本発明の第15は、生分解性樹脂層の表面に金属薄膜を転写することを特徴とする本発明の第1～8のいずれかの崩壊性積層体の製造方法を提供する。

【0012】

【発明の実施の形態】本発明の崩壊性積層体は、脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対してポリカプロラクトンを1～200重量部を配合してなる生分解性ポリエステル樹脂組成物からなる生分解性樹脂層(A)、該生分解性樹脂層の一方の表面の少なくとも一部に設けられた金属薄膜層(B)からなる。

(A) 生分解性樹脂層

生分解性樹脂層(A)は、生分解性樹脂組成物を成形して得られたフィルム、シート、不織布又はウェブ等であり、層の厚さは10μmから10mmであり、単層であ

っても、積層されていてもよい。

【0013】 1. 生分解性樹脂組成物

上記生分解性樹脂組成物は、脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対してポリカプロラクトンを1～200重量部、更に好ましくは5～50重量部、特に好ましくは20から40重量部を配合したものである。

【0014】 (1) ポリカプロラクトン

本発明で使用するポリカプロラクトンは、例えば水、アルコールなどの活性水素を開始剤として、これにε-カプロラクトンを開環重合することにより得られるものである。前記開始剤の官能基数は、特に制限はなく、2官能や3官能のものが好ましく使用できる。ポリカプロラクトンの分子量は、低分子量から高分子量まで使用できるが、低分子量のポリカプロラクトンを使用した場合は、混練樹脂の耐熱性や機械強度の低下が大きくなるので添加量が制限されるが、樹脂組成物の溶融粘度が低下し、成形性が向上する等のメリットが現れる。しかし高分子量のポリカプロラクトンを使用する方が配合率を多くすることができ、耐熱性、機械特性、生分解性をいずれも高くバランスさせることができあり、より好ましい。具体的には数平均分子量で1,000～200,000、好ましくは5,000～100,000、特に好ましくは10,000～100,000のポリカプロラクトンが使用できる。なお、200,000よりも高い数平均分子量を有するものも問題なく使用可能であるが、このような分子量の非常に高いポリカプロラクトンを得るのは難しく、現実的ではない。また、使用するポリカプロラクトンは、ε-カプロラクトンの単独重合体以外に、バレロラクトンや、グリコリド、ラクチドなどのコモノマー構成単位を、例えば20モル%以下含まれる共重合体も使用可能である。上記分子量のポリカプロラクトンはJIS K6726の規定による相対粘度1.15～2.80を有するものであり、特に好ましくは1.50～2.80を有するものである。市販のポリカプロラクトンとしてはプラクセル(ダイセル化学社製)等が挙げられる。

【0015】 (2) 脂肪族ポリエステル樹脂

脂肪族ポリエステル樹脂は、下記のウレタン結合を含まない脂肪族ポリエステル樹脂であっても、ウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂であってもよい。

(2. 1) ウレタン結合を含まない脂肪族ポリエステル樹脂

脂肪族ポリエステル樹脂の一つの例は、低分子脂肪族ジカルボン酸と低分子脂肪族ジオールとのポリエステルであり、炭素数1～10の直鎖又は分岐脂肪族ジオールと、炭素数1～10の直鎖又は分岐脂肪族ジカルボン酸からのポリエステルが好ましい。ジオール含有量は、20重量%～70重量%であり、かつ脂肪族ジカルボン酸含有量30重量%～80重量%のものが用いられる。また、脂肪族ポリエステル樹脂としては、融点が100℃

以上で、熱可塑性を有するものが好ましく、具体的には、コハク酸及び／又はアジピン酸と1, 4-ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂、コハク酸及び／又はアジピン酸とエチレングリコールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸とネオペンチルグリコールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸と1, 4-ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸とエチレングリコールから得られるポリエステル樹脂等が例示できるが、特に好ましくはコハク酸及び／又はアジピン酸と1, 4-ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂である。脂肪族ポリエステル樹脂の他の例としては、合成ポリ乳酸等の生分解性のポリエステル樹脂、前記特開平9-235360号、同9-233956号各公報記載の三元共重合体の脂肪族ポリエステル、特開平7-177826号公報記載の乳酸とヒドロキシカルボン酸共重合体、 ϵ -カプロラクトンと ϵ -カプロラクタムより合成されるポリアミドエステル樹脂、ポリアミノ酸樹脂等が挙げられる。脂肪族ポリエステル樹脂としては、GPCによる標準ポリスチレン換算で数平均分子量が20, 000以上200, 000以下、好ましくは40, 000以上のものが使用できる。ジオール／ジカルボン酸からの脂肪族ポリエステル樹脂としては、ウレタン結合を含まないビオノーレ（昭和高分子株式会社製）等を例示することができる。ポリ乳酸の市販品としては、ECOPLA（カーギル社製）、ラクティ（島津製作所製）等が挙げられる。

【0016】(2. 2) ウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂

ウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂としては、前記脂肪族ポリエステル樹脂のうちの低分子量脂肪族ポリエステル樹脂を、脂肪族ジイソシアネート化合物等により高分子量化したものである。脂肪族ジイソシアネート化合物としては、ヘキサメチレンジイソシアネート、リジンジイソシアネートメチルエステル [OCN-(CH₂)₄-CH(-NCO)(-COOCH₃)]、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等が例示されるが、中でもヘキサメチレンジイソシアネートが好ましい。またウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂の好ましい数平均分子量としては、20, 000以上、更に好ましくは40, 000以上の範囲である。市販のウレタン変性ポリエステル樹脂としては、例えば、ビオノーレ（昭和高分子株式会社製）等を例示することができる。

【0017】(3) 樹脂添加剤

上記ポリカプロラクトン(1)及び／又は脂肪族ポリエステル樹脂(2)には必要に応じて公知の樹脂添加剤を添加することができる。樹脂添加剤としては、可塑剤、熱安定剤、滑剤、ブロッキング防止剤、核剤、光分解促進剤、生分解促進剤、酸化防止剤、自動酸化剤、紫外線安定剤、帯電防止剤、導電剤、難燃剤、流滴剤、架橋剤、抗菌剤、防臭剤、充填剤、着色剤、澱粉、前記ポリ

カプロラクトン及び脂肪族ポリエステル樹脂以外の樹脂成分（例えば、エチレン共重合体やその他のポリオレフィン、水素添加ステレンーブタジエンゴム、ポリウレタン、ポリアミド、ポリヒドロキシブチレート等）、又はこれらの混合物が挙げられる。特に、光分解促進剤、自動酸化剤等の添加は、所望の期間経過の頃に該フィルムに脆性を付与する上で好ましい。

【0018】(3. 1) 可塑剤

本発明で用いる可塑剤としては、脂肪族二塩基酸エステル、フタル酸エステル、ヒドロキシ多価カルボン酸エステル、ポリエステル系可塑剤、脂肪酸エステル、エポキシ系可塑剤またはこれらの混合物が挙げられる。たとえば、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル(DOP)、フタル酸ジブチル(DBP)、フタル酸ジイソデシル(DIDP)等のフタル酸エステル、アジピン酸-2-エチルヘキシル(DOA)、アジピン酸ジイソデシル(DIDA)等のアジピン酸エステル、アゼライン酸-2-エチルヘキシル(DOZ)等のアゼライン酸エステル、アセチルクエン酸トリ-2-エチルヘキシル、アセチルクエン酸トリブチル等のヒドロキシ多価カルボン酸エステル、ポリブロピレンジオールアジピン酸エステル等のポリエステル系可塑剤であり、これらは一種または二種以上の混合物で用いられる。好ましくは、アゼライン酸-2-エチルヘキシル(DOZ)が挙げられる。これら可塑剤の添加量としては、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂との合計100重量部に対して、3～30重量部の範囲が好ましい。さらに、好ましくは5～15重量部である。3重量部未満であると、破断伸びや衝撃強度が低くなり、また30重量部を超えると、破断強度や衝撃強度の低下を招くので好ましくない。

【0019】(3. 2) 热安定剤

本発明で用いる熱安定剤としては、脂肪族カルボン酸塩がある。脂肪族カルボン酸としては、特に脂肪族ヒドロキシカルボン酸が好ましい。脂肪族ヒドロキシカルボン酸としては、乳酸、ヒドロキシ酪酸等の天然に存在するものが好ましい。塩としては、ナトリウム、カルシウム、アルミニウム、バリウム、マグネシウム、マンガン、鉄、亜鉛、鉛、銀、銅等の塩が挙げられる。これらは、一種または二種以上の混合物として用いることができる。添加量としては、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂との合計100重量部に対して、0.5～10重量部の範囲で、好ましくは、0.5～5重量部の範囲である。上記範囲で熱安定剤を用いると、衝撃強度（アイソット衝撃値）が向上し、破断伸び、破断強度、衝撃強度のばらつきが小さくなる効果がある。

【0020】(3. 3) 光分解促進剤

光分解促進剤としては、例えば、ベンゾイン類、ベンゾインアルキルエーテル類、ベンゾフェノン、4, 4-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノンなどのベンゾフェ

ノンとその誘導体；アセトフェノン、 α 、 α -ジエトキシアセトフェノンなどのアセトフェノンとその誘導体；キノン類；チオキサントン類；フタロシアニンなどの光励起材、アナターゼ型酸化チタン、エチレンー酸化炭素共重合体、芳香族ケトンと金属塩との増感剤などが例示される。これらの光分解促進剤は、1種又は2種以上併用できる。

【0021】(3.4) 生分解促進剤

生分解促進剤には、例えば、オキソ酸（例えば、グリコール酸、乳酸、クエン酸、酒石酸、リンゴ酸、などの炭素数2～6程度のオキソ酸）、飽和ジカルボン酸（例えば、修酸、マロン酸、コハク酸、無水コハク酸、グルタル酸、などの炭素数2～6程度の低級飽和ジカルボン酸など）などの有機酸；これらの有機酸と炭素数1～4程度のアルコールとの低級アルキルエステルが含まれる。好ましい生分解促進剤には、クエン酸、酒石酸、リンゴ酸などの炭素数2～6程度の有機酸、及び椰子殼活性炭等が含まれる。これらの生分解促進剤も1種又は2種以上併用できる。

【0022】(3.5) 滑剤

滑剤としては、一般に用いられる内部滑剤及び／又は外部滑剤が使用可能である。たとえば、脂肪酸エステル、炭化水素樹脂、パラフィン、高級脂肪酸、オキシ脂肪酸、脂肪酸アミド、アルキレンビス脂肪酸アミド、脂肪族ケトン、脂肪酸低級アルコールエステル、脂肪酸多価アルコールエステル、脂肪酸ポリグリコールエステル、脂肪族アルコール、多価アルコール、ポリグリコール、ポリグリセロール、金属石鹼、変性シリコーンまたはこれらの混合物が挙げられる。好ましくは、脂肪酸エステル、炭化水素樹脂等が挙げられる。上記脂肪酸アミドから適切な脂肪酸アミドを選択する場合には、もちろん配合される各種の脂肪族ポリエステル樹脂の融点に応じて、その融点以下の脂肪酸アミドを選択する必要がある。例えば、合成脂肪族ポリエステル樹脂の融点を考慮して、脂肪酸アミドとしては融点16～0°C以下の脂肪酸アミドが選ばれる。上記脂肪酸アミドの中で、環境汚染を防止する観点から、安全性が高く、且つ、FDA（米国食品医薬品局）に登録されているエチレンビスステアリン酸アミド、ステアリン酸アミド、オレイン酸アミド、エルカ酸アミドがよい。配合量は、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対し、滑剤を0.05～5重量部、好ましくは、0.1～3重量部を添加する。0.05重量部未満であると効果が充分でなく、5重量部を超えるとロールに巻きつかなくなり、物性も低下する。市販品としては、リケスターEW-100（理研ビタミン社製）やヘキストワックスOP（ヘキスト社製）等が挙げられる。

【0023】また、ウェッティング剤としての液状滑剤は、融点が70°C以下が好ましく、常温で液状のものがより好ましく使用される。例えば、流動パラフィン、パ

ラフィンワックス、ステアリルアルコール、ステアリン酸等の他、ステアリン酸ブチル、ステアリン酸モノグリセリド、ペントエリスリトールテトラステアレート、ステアリルステアレート等のステアリン酸エステル類などを挙げることができる。

【0024】なお、上記液状滑剤中最も好ましい流動パラフィンは経口急性毒性（ラット）LD50が5g/kgであるので非常に安全であり、食品衛生法の食品添加物として認められていて、フィルム・シートを廃棄した場合の環境汚染防止の点で非常に好都合の材料である。上述のごとく滑剤としては液状滑剤を選択したが、若し固体滑剤を使用する場合は、樹脂組成物を含む全体の系が、該固体滑剤の融点以上である必要があり、該融点以下の低温では使用困難である。室温において液体である流動パラフィンはこの点で好ましい滑剤である。

【0025】液状滑剤の使用目的は、ポリカプロラクトンや脂肪族ポリエステル樹脂が、通常ペレットもしくはビーズ状で供給され、これに嵩比重の極めて小さい微粉末シリカ等を均一に混合しようすると、該ペレットやビーズの表面を可及的ウェットにしておくことが好ましいためである。このような使用目的を有する液状滑剤の添加量は、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂の合計量100重量部に対して、好ましくは0.1～3重量部、より好ましくは0.2～0.7重量部の範囲で添加される。添加量が3重量部を超えると液状滑剤が混合用タンブラーの内面に多量に付着し、べたついて安定な混合が難しくなることがあり、0.1重量部未満ではウェッティング剤としての効果が充分には発揮できないことがある。この傾向は、より好ましい0.2～0.7重量部の範囲外についても見られる。

【0026】(3.6) 充填剤

充填剤としては微粉末シリカ、タルク、炭酸カルシウム、マイカ、珪酸カルシウム、ホワイトカーボン、石綿、陶土（焼成）、ガラス纖維等が挙げられる。微粉末シリカの使用は、原料フィルム又は製品シートのブロッキング防止を図ることにある。使用される微粉末シリカは、湿式法でつくられたシリカや、四塩化ケイ素の酸水素焰中での高温加水分解により製造されたシリカ等が充当されるが、特に粒径が50μm以下のものが好ましい。添加方法としては、本発明に係るポリカプロラクトン単独、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステルとかなる組成物又は更に脂肪酸アミドを添加してなる樹脂組成物に加熱混練される方法が最も好ましく、かなりの高い剪断力が作用し二次凝集粒子がほぐされ、フィルムのブロッキング防止効果を発揮する。なお、微粉末シリカの添加量は、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂の合計量100重量部に対して0.1～3重量部の範囲が上記効果の発揮の点で最も好ましい。

【0027】(3.7) 導電剤、帶電防止剤
帶電が問題になる場合には、カーボン、金属粉、導電性

樹脂等の導電性材料やノニオン系、カチオン系またはアニオン系の公知の帶電防止剤が使用される。

【0028】(3.8) 濕粉

澣粉としては、生澣粉、加工澣粉及びこれらの混合物が挙げられる。生澣粉としてはトウモロコシ澣粉、馬鈴薯澣粉、甘藷澣粉、コムギ澣粉、キャッサバ澣粉、サゴ澣粉、タビオカ澣粉、コメ澣粉、マメ澣粉、クズ澣粉、ワラビ澣粉、ハス澣粉、ヒシ澣粉等が挙げられ、加工澣粉としては、物理的変性澣粉 (α -澣粉、分別アミロース、湿熱処理澣粉等)、酵素変性澣粉 (加水分解デキストリン、酵素分解デキストリン、アミロース等)、化学分解変性澣粉 (酸処理澣粉、次亜塩素酸酸化澣粉、ジアルデヒド澣粉等)、化学変性澣粉誘導体 (エステル化澣粉、エーテル化澣粉、カチオン化澣粉、架橋澣粉等) などが挙げられる。上記の中、エステル化澣粉としては、酢酸エステル化澣粉、コハク酸エステル化澣粉、硝酸エステル化澣粉、リン酸エステル化澣粉、尿素リン酸エステル化澣粉、キサントゲン酸エステル化澣粉、アセト酢酸エステル化澣粉など；エーテル化澣粉としては、アリルエーテル化澣粉、メチルエーテル化澣粉、カルボキシメチルエーテル化澣粉、ヒドロキシエチルエーテル化澣粉、ヒドロキシプロピルエーテル化澣粉など；カチオン化澣粉としては、澣粉と2-ジエチルアミノエチルクロライドの反応物、澣粉と2,3-エボキシプロピルトリメチルアンモニウムクロライドの反応物など；架橋澣粉としては、ホルムアルデヒド架橋澣粉、エピクロルヒドリン架橋澣粉、リン酸架橋澣粉、アクリレイン架橋澣粉などが挙げられる。上記澣粉の添加量は特に限定されるものではないが、生分解性向上という添加目的を効果的に達成するためには、ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂の合計量100重量部に対して、10~80重量部が好ましいが、25~50重量部の範囲が特に好ましい。

【0029】着色剤としては公知の染料、顔料が使用できる。これにより所望の色やデザインや植物の包装、成育等に好ましいものが得られる。

【0030】ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂及び必要に応じて添加される樹脂添加剤との混練方法は、一般的な方法が好ましく使用でき、具体的にはペレットや粉体、固体の細片等をヘンシェルミキサーやりボンミキサーで乾式混合し、単軸や2軸の押出機、バンパリーミキサー、ニーダー、ミキシングロールなどの公知の溶融混合機に供給して溶融混練することができる。また、液状のポリカプロラクトンを添加する場合でも、同様の方法で混練することができる。例えば、組成物の一例の製造方法について説明すると、先ずポリカプロラクトン及び脂肪族ポリエステルと液状滑剤をタンブラーに入れて10~20分攪拌混合し、次いで脂肪酸アミドを添加し、これに微粉末シリカ及び澣粉を加えて、更に20~30分間攪拌混合する。その後、単軸或いは2軸

押出機等により140~210°C程度で溶融混練を行い、各種添加剤を含む樹脂組成物の粉末又はペレットを得ることができる。

【0031】脂肪族ポリエステル樹脂とポリカプロラクトンを混練する場合は、両者に相溶性の有ることが混練して得られる樹脂組成物の機械特性の面から好ましいが、両者の相溶性が無い場合は、例えば、被混練樹脂成分とポリカプロラクトン成分の共重合体等の相溶化剤、例えば両者の中間の極性を有する樹脂等の添加も好ましく使用できる。

【0032】ポリカプロラクトンと脂肪族ポリエステル樹脂との組成物は、メルトフローインデックス (M_I) が190°Cにおける荷重2160gで測定して、0.5~20g/10minが好ましく、特に1~5g/10minが適している。

【0033】(4) 生分解性樹脂組成物の製造方法
上記の配合組成よりなる本発明の樹脂組成物を得る方法としては、特に限定されない。例えば、上記の配合組成物を得るのに、先ず主要ポリマー成分としてのポリカプロラクトン及び脂肪族ポリエステル樹脂と必要により液状滑剤をタンブラーに入れて10~20分攪拌混合し、次いで必要により、脂肪酸アミドを添加し、微粉末シリカを加え、さらに澣粉を加えて、さらに20~30分攪拌混合する。その後、単軸或いは2軸押出機等により140~210°C程度で溶融混練を行い、樹脂組成物の粉末又はペレットを得る。

【0034】2. 生分解性樹脂層の製造

上記の如くして得られた粉末又はペレット状の樹脂組成物は、従来の各種の成形方法によりフィルム、シート、不織布又はウェブ等に成形して、金属薄膜層との積層に使用することができる。例えば、インフレーション法によりフィルム又はシートに成形することができる。生分解性樹脂層の厚さは、目的によって異なるが、フィルムあるいはシートでは、例えば、薄のでは1μm以上、好ましくは10μm以上、特に好ましくは50μm以上であり、厚のでは10mm以下、好ましくは1mm以下、特に好ましくは0.5mm以下である。以下に、インフレーションフィルムの成形法を示す。初めに、環状ダイを備えた押出機に供給され、180°Cの温度で溶融混練されて環状のダイスリットよりチューブ状に押出される。例えば、このときの押出機の押出径は4.0~6.5mm程度で、長さ/直徑の比率 (L/D) が2.6~3.2であり、環状ダイの直徑は5.0~10.0mmものが採用でき、ダイスリットのギャップは0.5~1.5mmの範囲がよい。押出されたチューブ状のフィルムはダイを貫通して挿入された気体吹込管より導入された気体の圧力によって、ブロー比 (チューブ径/ダイ径) を2以上として、所定の径まで膨張され、次いでニップロールにより一定速度で引き取られる。本発明においては、環状ダイより押出される樹脂の温度にかかわらず、安定し

て、フィルムの製造が可能であるが、外気温が夏場等のような、かなりの高い温度のときは、20°C以下の冷風を気体吹込み管より導入すると、より完全にブロッキングのないフィルムが得られる。

【0035】3. 金属薄膜層

金属薄膜層は、金属箔、蒸着膜、転写膜又はメッキ膜であり、上記生分解性樹脂層の表面に各種方法により直接または接着剤を介して積層される。金属薄膜層を、生分解性樹脂層と直接積層する方法としては下記の方法が挙げられる。プラスチックフィルムと金属箔のラミネートではドライラミネート、ホットメルトラミネート法が使用できる。プラスチックフィルムの表面上に金属蒸着膜を設けるには、真空蒸着、イオンプレーティング、スパッタリング法のようなイオンプレーティング法が使用できる。なお、イオンプレーティング法の前処理技術としては、(1)アンダーコーティング、(2)トップコーティング、(3)ドライトップコーティングが使用できる。プラスチックフィルムの表面上に金属薄膜を積層するには転写法を使用することもできる。転写法としては、(1)熱転写、(2)水圧転写、(3)感圧転写、(4)スライド転写等が使用できる。また、プラスチックフィルムの表面上に金属薄膜を積層するには直接印刷、ラベリング法を使用することもできる。さらに、プラスチックフィルムの表面上に金属薄膜を積層するには電解メッキまたは無電解メッキ法を使用することもできる。

【0036】金属の種類としては、アルミニウム、亜鉛、スズ、銅、金、銀、白金、パラジウム、コバルト、コバルトニッケル、ニッケル、ニッケルクロム、クロム、コバルトクロム、SUS、チタン等が挙げられる。金属薄膜の厚みは、用途によって異なるが、金属箔では0.1~100μm、蒸着のように極薄膜では70~1,000オングストロームである。他の方法ではその中間の厚みの層を設けることができる。金属の種類、膜厚は目的によって選択される。例えば、上記範囲の厚みのアルミ箔を生分解性樹脂フィルムに熱ラミネートして得られたラミネートフィルムでは、コーヒー粉等を包装して中身の空気や熱等による変質を長期間にわたって防止したり、レトルト食品の熱水等で加熱調理するときの袋の強度、耐浸透性等を保つのに有効である。また生分解性樹脂フィルムにアルミニウムを蒸着したものは、たばこの包装等に使用可能であり、蒸着層の厚さは、光の波長よりも薄くてもよく、遮光性、防湿性、ガスバリア性の点を考慮すると、上記範囲内が好ましく、経済的である。また、プラスチック製成品の表面に絵付けを行うために、台紙付き転写用フィルムの上に貴金属の0.01~1ミクロン程度の薄膜を印刷し、該フィルムを成形品表面に、感熱/感圧転写して台紙を取り去り、金属薄膜を成形品表面に転写することができる。

【0037】4. 接着層

本発明の崩壊性積層体は、必要であれば、生分解性樹脂層の一方の表面の少なくとも一部に接着剤層を設け、該接着剤層の上に金属薄膜層を設けることができる。生分解性樹脂層の、接着剤層が形成される側の表面には、予めコロナ放電処理を施し、その表面を粗くしておくことも可能であり、接着剤層と生分解性樹脂層とを非常に強固に接着させることができる。組成物層の表面に接着剤層を設けることにより、生分解性樹脂層に含有されている可塑剤等が生分解性樹脂層と接着剤層との界面に移行しても接着力が維持され、接着剤層と金属薄膜層との接着力が低下するのを抑制することができる。また、接着剤層が生分解性樹脂層および金属薄膜層を接着しているので、生分解性樹脂層の表面に直接金属薄膜層を設けた場合に比べて、強固に接着される。また、接着剤層は、金属蒸着を行った場合に、蒸着金属粒子を吸収するため、金属の不要な酸化を低減することができる。また、接着剤層は、コロナ放電処理等の前処理により粗面化された生分解性樹脂層、例えばフィルムの表面を平滑化できる。

【0038】接着剤層を構成する接着剤としては、ホットメルト接着剤、フェノール樹脂系接着剤、ユリア樹脂系接着剤、メラミン樹脂系接着剤、酢酸ビニル樹脂系接着剤、アクリル樹脂系接着剤、セルロース樹脂系接着剤、ウレタン系樹脂接着剤、ラテックス系接着剤、アクリルエマルジョン系接着剤、天然ゴム系接着剤またはエポキシ系樹脂接着剤等が挙げられる。ドライラミネートにはホットメルト接着剤、二液硬化型接着剤または活性エネルギー線硬化型接着剤が好ましく用いられる。二液硬化型接着剤としては、公知のウレタン系樹脂接着剤またはエポキシ系樹脂接着剤等が挙げられる。また、活性エネルギー線硬化型接着剤としては、電子線や紫外線の照射により硬化するものであって、公知のウレタン系樹脂接着剤またはアクリル系樹脂接着剤等が挙げられる。接着剤の使用量は、硬化膜基準で0.1~100g/m²、好ましくは1~10g/m²である。

【0039】5. 表面コート層

本発明の崩壊性積層体の表面には、必要に応じて表面コート層を設けることができる。表面コート層は印刷等の加飾を行う場合に、金属薄膜層の上に直接行う場合に良好な結果が得られない場合に設けられる。さらに、表面コート層は、太陽光線、温度または湿度から金属薄膜層を保護し、変色や変質を抑制できる。表面コート層としては、上記生分解性樹脂組成物や公知の下地塗料が用いられる。下地塗料としては、例えばラッカ下地塗料、カシューナツ系、塩化ビニル樹脂系、酢酸ビニル樹脂系、アクリル系、ゴム系、アルキッド系、エポキシ系、ウレタン系等のものが挙げられる。表面コート層は、上記生分解性樹脂組成物又は下地塗料を金属薄膜の表面に塗布した後、硬化させて形成される。但し、印刷インキとしてアルミニウム薄膜との馴染みに優れたビニル加工

用特殊インキ等を用いる場合には、表面コートは不要である。表面コート層の表面には、オフセット印刷、紫外線オフセット印刷、グラビア印刷、シルクスクリーン印刷またはフレキソ印刷等により印刷を行うことができる。

【0040】6. 粘着剤層

積層体を表示用シール、テープ等として使用する場合には、積層体の裏面（識別、表示する面と反対の面）には粘着剤層を設けて、積層体を他の物（例えば自動販売機、建物の扉等）の表面に貼りつけることができる。粘着剤層としては、従来のベースエラストマー又はベース樹脂に粘着付与剤、充填剤、軟化剤等を添加したものが使用できる。ベースエラストマーとしては、天然ゴム、SBR、ブチルゴム、ポリイソブチレン等のエラストマーが挙げられる。ベース樹脂としてはポリビニルメチル（またはエチル）エーテル、アクリル系ポリマーが挙げられる。粘着付与剤としてはロジン系樹脂、テルペン系樹脂、石油樹脂等が挙げられる。粘着剤層の厚みとしては0.01～0.5mm程度である。粘着剤層表面には剥離紙が被せられた後、粘着剤層付き積層体の製品として保管される。

【0041】7. 積層体の構成

以下、図を使用して本発明の各種の崩壊性積層体の層構成を説明する。図1は生分解性樹脂層2及び金属薄膜層3を各1層づつ有する崩壊性積層体1の断面図を示す。金属薄膜層3は生分解性樹脂層2の一方の表面の少なくとも一部に設けられてもよいし、逆に、生分解性樹脂層2は金属薄膜層3の一方の表面の少なくとも一部に設けられてもよい。勿論、お互いの全面に設けられてもよい。図1の変形としては、二枚の生分解性樹脂層の間に一枚の金属薄膜層が挟まれたもの、二枚の金属薄膜層の間に一枚の生分解性樹脂層が挟まれたもの、生分解性樹脂層と金属薄膜層が交互に層をなすもの等が挙げられる。図2は生分解性樹脂層2と金属薄膜層3の間に接着剤層4を有する崩壊性積層体1の断面図を示す。これらの変形としては、接着剤層を介して、二枚の生分解性樹脂層の間に一枚の金属薄膜層が挟まれたもの、二枚の金属薄膜層の間に一枚の生分解性樹脂層が挟まれたもの、生分解性樹脂層と金属薄膜層が交互に層をなすもの等が挙げられる。また、金属薄膜との間で接着剤層を必要とする生分解性樹脂層と必要としない生分解性樹脂層からなる場合には、必要な方のみに接着剤層を設けてよい。接着剤層は、生分解性樹脂層の上に設けられても、金属薄膜層の上に設けられてもよい。金属薄膜層3の厚みが薄い場合には生分解性樹脂層の上に設けられた接着剤層4の上に金属薄膜層3を設けることもできる。図3は、転写用台紙11の上に金属薄膜層3を設けて転写材12とした後、該転写材12の金属薄膜層3の上に接着剤層4を設け、これを矢印のように生分解性樹脂層2の上に該接着剤層を介して貼り合わせて、転写用積層体／

フィルム積層体を得る工程を断面図で示したものである。貼り合わせ後、該転写用積層体／フィルム積層体から該転写用台紙11を剥離して崩壊性積層体1を得る。転写法による崩壊性積層体の製造方法について、金属薄膜としてアルミニウム蒸着層を使用して説明する。転写用台紙11は、剥がしてしまうので生分解性のものでなくとも構わず、具体的には、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリエチレン、ポリ塩化ビニール、ポリアミドもしくはこれらのうち2種以上の材料の組み合わせ、または、再生セルロースであり、剥離性に優れていること、および、再使用が可能であることから、表面未処理の二軸延伸ポリプロピレンフィルムが好ましい。また、転写用台紙11のアルミニウム蒸着層3に対する接着力は、接着剤層4のアルミニウム蒸着層3に対する接着力よりも小さくすることが必要である。これにより、転写用台紙11をアルミニウム蒸着層3から容易に剥離し、アルミニウム蒸着層3を、生分解性樹脂層2の表面上に設けられた接着剤層4へ容易に転写させることができる。図4は、図1で示された崩壊性積層体1の金属薄膜表面に表面コート層5を設けた崩壊性積層体1の断面図を示す。変形としては上記各図やその変形例で示された崩壊性積層体1の金属薄膜表面に表面コート層5を設けることもできる。図5は、図1で示された崩壊性積層体1の、生分解性樹脂層2の金属薄膜層3と接する面と反対の表面に粘着剤層7を設け、該粘着剤層7の表面に剥離紙8を設けた崩壊性積層体1の断面図を示す。変形としては上記各図やその変形例で示された崩壊性積層体1の、生分解性樹脂層2の金属薄膜層3と接する面と反対の表面に粘着剤層7を設け、該粘着剤層7の表面に剥離紙8を設けることもできる。

【0042】8. 用途

本発明の崩壊性積層体では、樹脂層自体の強度が高く、崩壊性又は生分解性が良く、吸湿性があるので静電気を帯びにくくまた埃が付きにくく、さらにインキの乗りが良いという特徴を持つので、金属薄膜を積層した崩壊性積層体は、装飾用、ガスバリアー用、光遮蔽用、ハードコート用の性能を有し、包装フィルム（食品、電気部品等）として使用され、さらに粘着剤層を設けてラベル、テープ等としても使用される。また、崩壊性又は生分解性で、塵の付きにくい導電性フィルム、磁気テープ等にも使用できる。

【0043】

【実施例】以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例中「%」及び「部」とあるのは、特に断りのない限り重量基準を表す。

メルトイインデックス：190°Cにおける2,160g荷重の時の値である。

機械特性：機械強度、破断時伸び測定は、サンプルは3号ダンベルを使用し、J·I·S 7112に準じて行つ

た。

耐熱性：樹脂片（30×30×1mm）を2枚重ねて、オーブン中で加熱し、融着状況を観察し、融着が生じる最低温度を求めた。

生分解性：JIS K6950に準じて、活性汚泥中の酸素消費量から生分解性を求めた。結果は4週間培養後の分解率で示した。

【0044】（製造例1）コハク酸（Mw=118）35.4gと1,4-ブタンジオール（Mw=90）29.1gとテトライソプロピルチタネート0.02gを攪拌機、分流管、ガス導入管、減圧用管を備えたフラスコに入れ、窒素雰囲気常圧下、200°Cで2時間、引き続いて徐々に減圧にしながら、0.5mmHg以下に到達した後、200°Cで5時間攪拌し、水及び過剰の1,4-ブタンジオールを系内から留出除去し、ポリエステル樹脂を合成した。次に、窒素雰囲気常圧下、200°Cでヘキサメチレンジイソシアネート（Mw=168）を0.8g添加して、分子量を上げたポリエステル樹脂（A）を合成した。ポリエステル樹脂（A）の数平均分子量はGPCによる標準スチレン換算で約44,000、重量平均分子量は約185,000であった。ポリエステル樹脂（A）とポリカプロラクトンとの混練およびシートサンプルの成形は、以下の方法で行った。ポリエステル樹脂（A）を100重量部と、ポリカプロラクトン「PCLH7」（ダイセル化学工業製、数平均分子量70,000）11.1重量部をラボプラストミルに供給して150°C、30rpmで混練し、トルクが安定した後、更に10分間加熱混練した。得られた樹脂組成物を加熱プレス成形し、150×150×1mmシートを作製した。加熱プレス成形は、金型に必要量の樹脂を入れて予熱（150°C、10分間）し、加圧成形（150°C、100kg/cm²、10分間）した後、自然放冷し、金型からシートを取り出す方法で行った。

【0045】（製造例2）コハク酸ジメチル（Mw=146）43.8g、1,4-ブタンジオール29.1g、テトライソプロピルチタネート0.02gを攪拌機、分流管、ガス導入管、減圧用管を備えたフラスコに入れ、窒素雰囲気常圧下、190°Cで2時間、引き続いて徐々に減圧にしながら、1~0.5mmHgで200°Cに昇温して8時間攪拌し、更に0.5~0.1mmHgで210~220°Cに昇温して5時間攪拌し、メタノール及び過剰の1,4-ブタンジオールを系内から留出除去し、ポリエステル樹脂（B）を合成した。ポリエステル樹脂（B）の数平均分子量は約38,000、重量平均分子量は約75,000であった。ポリエステル樹脂（B）とポリカプロラクトンとの混練とシートサンプルの成形は、以下の方法で行った。ポリエステル樹脂（B）を100重量部と、ポリカプロラクトン「PCLH1P」（ダイセル化学工業製、数平均分子量10,000）11.1重量部をラボプラストミルに供給して1

50°C、30rpmで、トルクが安定した後、10分間加熱混練した。得られた樹脂組成物を、加熱プレス成形して150×150×1mmシートを作製した。加熱プレス成形は、金型に必要量の樹脂を入れて予熱（150°C、10分間）し、加圧成形（150°C、100kg/cm²、10分間）した後、自然放冷し、金型からシートを取り出す方法で行った。

【0046】（比較製造例1）ポリエステル樹脂（A）をラボプラストミル中で150°C、30rpmでトルクが安定した後、10分間加熱混練した樹脂を、加熱プレス成形して150×150×1mmシートを作製した。加熱プレス成形は、金型に必要量の樹脂を入れて予熱（150°C、10分間）し、加圧成形（150°C、100kg/cm²、10分間）した後、自然放冷し、金型からシートを取り出す方法で行った。

【0047】（比較製造例2）ポリエステル樹脂（B）をラボプラストミル中で、150°C、30rpmでトルクが安定した後10分間、加熱混練した樹脂を、加熱プレス成形して150×150×1mmシートを作製した。加熱プレス成形は、金型に必要量の樹脂を入れて予熱（150°C、10分間）し、加圧成形（150°C、100kg/cm²、10分間）した後、自然放冷し、金型からシートを取り出す方法で行った。

【0048】（比較製造例3）ポリカプロラクトンPC-LH7（ダイセル化学工業製）をラボプラストミル中で150°C、30rpmでトルクが安定した後、10分間加熱混練した樹脂を、加熱プレス成形して150×150×1mmシートを作製した。加熱プレス成形は、金型に必要量の樹脂を入れて予熱（150°C、10分間）し、加圧成形（150°C、100kg/cm²、10分間）した後、自然放冷し、金型からシートを取り出す方法で行った。

【0049】機械特性、耐熱性等の評価は各成形シートから、次の形状のサンプルを得て行った。機械特性の評価はダンベル形状のシートを、耐熱性は30mm角のシートを、溶融粘度はシート樹脂の細片をサンプルとした。

【0050】（実施例1）製造例1で得られたシートに厚さ10μmのアルミ箔を180°Cでラミネートして、アルミ層を有する崩壊性積層体を得た。

生分解性：上記で得られたラミネートシートを粉碎し、都市下水汚泥環境下にて、JIS K6950に準じた28日間の生分解性試験に供した。

【0051】（実施例2、比較例1~3）製造例2、比較例1、比較例2又は比較例3で得られたシートに、厚さ10μmのアルミ箔を実施例1と同様にしてラミネートして、アルミ層を有する崩壊性積層体を得た。

【0052】機械特性、耐熱性等の評価は各成形シートから、次の形状のサンプルを得て行った。機械特性の評価はダンベル形状のシートを、耐熱性は30mm角のシ

ートを、溶融粘度はシート樹脂の細片をサンプルとした。生分解性はラミネートシートを粉碎してサンプルとした。評価方法及び結果は表1に示した。

表1

	製造例1	製造例2	比較製造例1	比較製造例2	比較製造例3
破断強度 (kg/cm ²)	620	340	600	355	610
破断時伸び (%)	560	285	530	280	730
耐熱性 (°C)	115	115	118	118	60
	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
生分解性(分解率%)	36	40	2	15	81

【0054】表1によると、実施例1、2の実際の生分解性結果は、ポリエステル樹脂(A)、(B)およびポリカプロラクトンの混合比率から期待される生分解率(実施例1では10%、実施例2では22%)よりも、それぞれ約260%と100%改善されていることが分かる。これはポリエステル樹脂(A)、(B)はポリカプロラクトンにより、誘引分解したものと考えることができる。以上のことから、ポリカプロラクトンを混練することにより、被混練脂肪族ポリエステル樹脂の融点低下等物性の低下を殆ど伴うことなく、混練による生分解性の改善効果が明らかである。

【0055】(樹脂組成物の調製)

【調製例1】ポリカプロラクトン40部、ポリ1,4-ブタンジオール-コハク酸エステル60部、流動パラフイン0.5部及びステアリン酸アミド1部を2軸スクリュータイプのベント式押出機(40mm径)に入れ、ダイス温度180°Cで押出して樹脂組成物のペレットを得た。この樹脂組成物のメルトイシデックスは3.5g/10minであった。

【0056】【調製例2】ポリカプロラクトン40部、ポリ1,4-ブタンジオール-コハク酸エステル60部、流動パラフイン0.5部、ステアリン酸アミド0.8部、アエロジル#200(日本アエロジル社製)0.8部を用いて調製例1と同様に樹脂組成物ペレットを得た。この樹脂組成物のメルトイシデックスは3.9g/10minであった。

【0057】【調製例3】ポリカプロラクトン40部、ポリ1,4-ブタンジオール-コハク酸エステル60部、流動パラフイン0.5部、ステアリン酸アミド0.5部、アエロジル#200(同上)0.5部を用いて調製例1と同様に樹脂組成物ペレットを得た。この樹脂組成物のメルトイシデックスは3.7g/10minであった。

【0058】【調製例4】ポリカプロラクトン40部、ポリ1,4-ブタンジオール-コハク酸エステル60

【0053】

【表1】

部、流動パラフイン0.5部、ステアリン酸アミド0.5部、アエロジル#200(同上)0.5部、トウモロコシ澱粉50部を用いて調製例1と同様に樹脂組成物ペレットを得た。この樹脂組成物のメルトイシデックスは2.5g/10minであった。

【0059】【調製例1】調製例1で調製した樹脂組成物を用いて以下の如き成形条件でインフレーション法によりフィルムを製造した。

成形条件

押出機: 40mm径押出機

スクリュー: L/D=28、MDPE(中密度ポリエチレン)用スクリュー

ダイ: リップ径150mm、ダイギャップ1mm

押出温度: シリンダー先端部において170°C

ダイ温度: 170°C

樹脂温度(T1): 160°C

スクリュー回転数: 1.5 rpm

吐出量: 15kg/hr

プローピ: 2.5

【0060】得られたインフレーションフィルムについて、ブロッキング性、フィルム外観、生分解性を以下の要領で調べた。ブロッキング性: ニップロールで折り畳まれて引取り機で巻き取られたチューブ(全長100m)を指で簡単に開口できるか否かを調べて、開口するものをブロッキング無しとして判断した。フィルム外観: 未溶融ゲルの混入、スジ、発泡等の有無や表面の平滑性について調べて、表面の平滑性に優れかつ未溶融ゲルの混入、スジ、発泡等のないものを良好と判断した。結果を表2に示す。

【0061】(調製例2~4)調製例2~4の樹脂組成物についても調製例1と同条件で製膜を行い、同様に評価を行った。評価結果を表2に示す。

【0062】(実施例3)調製例1で得られたフィルムをコロナ放電処理した後、フィルムの片面にアルミニウムを約200オングストローム蒸着して、アルミニウム蒸着層

を有する崩壊性積層体を得た。崩壊性積層体の評価結果を表2に示す。得られた崩壊性積層体のアルミ蒸着層表面に模様を印刷し、片面の樹脂組成物層の表面に天然ゴム系の粘着剤層を設け、その上に離型紙を貼り合わせて、ラベル用のフィルムの巻物とした。

【0063】(実施例4～6) 製膜例2～4で得られたフィルムを実施例3と同様に処理して、アルミ蒸着層を有する崩壊性積層体を得た。崩壊性積層体の評価結果を表2

製膜例	フィルムのブロッキング有無	フィルムの外観	実施例	生分解性
製膜例1	無し	良好	実施例3	7.5%
製膜例2	無し	良好	実施例4	7.3%
製膜例3	無し	良好	実施例5	7.5%
製膜例4	無し	良好	実施例6	8.5%

【0065】(実施例7) 実施例3で得られたアルミ蒸着層を有する崩壊性積層体のアルミ層の上に、接着剤(アクリルエマルジョン系接着剤)を塗布し、製膜例1で得られたフィルムを表面コート層として貼り合わせた。このものを堆肥中で2ヶ月間放置したところ、フィルムの形状は無かった。

【0066】

【発明の効果】本発明によれば、自然環境下において、短時間で容易に生分解性或いは崩壊性を示す金属薄膜層を有する崩壊性積層体が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係る生分解樹脂層と金属薄膜層を有する崩壊性積層体の断面図を示す。

【図2】本発明に係る生分解樹脂層と接着剤層と金属薄膜層とを有する崩壊性積層体の断面図を示す。

【図3】本発明に係る転写法による生分解樹脂層と金属薄膜層と両層の間に設けられた接着剤層を有する崩壊性積層体の断面図を示す。

表2に示す。得られた崩壊性積層体のアルミ蒸着層表面に模様を印刷し、片面の樹脂組成物層の表面に天然ゴム系の粘着剤層を設け、その上に離型紙を貼り合わせて、ラベル用のフィルムの巻物とした。実施例3～6の評価結果を表2に示す。

【0064】

【表2】

【図4】本発明に係る生分解樹脂層と金属薄膜層と金属薄膜層の上に設けられた表面コート層とを有する崩壊性積層体の断面図を示す。

【図5】本発明に係る生分解樹脂層と金属薄膜層と生分解樹脂層の下に設けられた粘着剤層、さらに粘着剤層の下に設けられた剥離紙を有する崩壊性積層体の断面図を示す。

【符号の説明】

- 1 崩壊性積層体
- 2 生分解性樹脂層
- 3 金属薄膜
- 4 粘着剤層
- 5 表面コート層
- 7 粘着剤層
- 8 剥離紙

- 11 台紙
- 12 転写材

【図1】



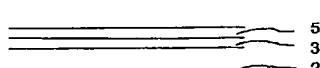
【図2】



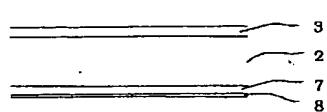
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4F100 AB01B AB10B AB13B AB15B
AB16B AB17B AB18B AB22B
AB24B AB25B AB31B AB33B
AH02B AH03B AK41A AK48A
AL05A AR00C BA02 BA03
BA04 BA07 BA10B BA10C
BA26 CB05 DG10D EC042
EH012 EH232 EH662 EH712
EJ37A EJ91C EK06 JC00
JC00A JD05 JD14 JG03
JK01 JL14D JM02B JN06
4J002 CF03W CF19X CK03W FD020
FD060 FD170 FD200 GF00